

Bibliographic Information

Preparation of 5-(alkoxymethyl)-3-phenyl-2-furanone derivatives as herbicides and pesticides. Akiyoshi, Yuji; Tsutsumiuchi, Kiyoshi; Narita, Isamu; Okada, Tatsuo; Nakamura, Kazuyuki; Nakamura, Akira. (Ube Industries, Ltd., Japan). Jpn. Kokai Tokkyo Koho (2000), 13 pp. CODEN: JKXXAF JP 2000053670 A2 20000222 Patent written in Japanese. Application: JP 98-225561 19980810. Priority: . CAN 132:166117 AN 2000:120867 CAPLUS (Copyright (C) 2006 ACS on SciFinder (R))

Patent Family Information

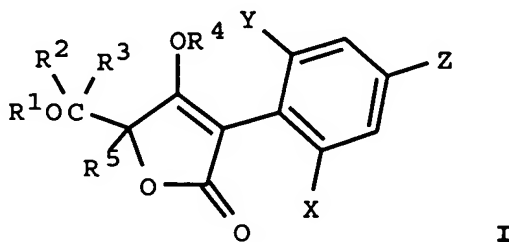
<u>Patent No.</u>	<u>Kind</u>	<u>Date</u>	<u>Application No.</u>	<u>Date</u>
JP 2000053670	A2	20000222	JP 1998-225561	19980810

Priority Application

JP 1998-225561	19980810
----------------	----------

Abstract

The title compds. [I; R¹ = C1-6 alkyl, C3-6 alkenyl, C3-6 alkynyl, C3-6 cycloalkyl, C4-12 cycloalkylalkyl, Ph, CH₂Ph; R² = H, C1-6 alkyl, C1-6 alkoxy; R³ = C1-6 alkyl, C2-6 alkoxyalkyl; R² and R³ are bonded together to form a C3-6 cycloalkyl; R⁴ = H, R⁷CO, R⁸SO₂; R⁷ = C1-6 alkyl; R⁸ = (un)substituted Ph; R⁵ = H, C1-6 alkyl; X, Y, Z = H, C1-6 alkyl, halo] are prepd. Thus, 3-methoxy-3-methyl-2-[(2,4,6-trimethylbenzylcarbonyl)oxy]butanoic acid Et ester was dissolved in THF, treated with potassium tert-butoxide and stirred at room temp. for 1 h to give 47% 4-hydroxy-5-(1-methoxy-1-methylethyl)-3-(2,4,6-trimethylphenyl)-2,5-dihydrofuran-2-one (II). II at 300 ppm controlled 100% *Nilaparvata lugens* larvae.



THIS PAGE BLANK (USPTO)

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開2000-53670

(P2000-53670A)

(43) 公開日 平成12年2月22日 (2000.2.22)

(51) Int.Cl. ⁷	識別記号	F I	テマコード [*] (参考)
C 0 7 D 307/60		C 0 7 D 307/60	Z 4 C 0 3 7
A 0 1 N 43/08		A 0 1 N 43/08	H 4 H 0 1 1

審査請求 未請求 請求項の数 5 O L (全 13 頁)

(21) 出願番号 特願平10-225561

(22) 出願日 平成10年8月10日 (1998.8.10)

(71) 出願人 000000206

宇部興産株式会社

山口県宇部市西本町1丁目12番32号

(72) 発明者 穂吉 祐二

山口県宇部市大字小串1978番地の5 宇部

興産株式会社宇部研究所内

(72) 発明者 堤内 清志

山口県宇部市大字小串1978番地の5 宇部

興産株式会社宇部研究所内

(72) 発明者 成田 勇

山口県宇部市大字小串1978番地の5 宇部

興産株式会社宇部研究所内

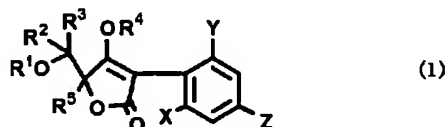
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 アルコキシメチルフラノン誘導体及び有害生物防除剤

(57) 【要約】 (修正有)

【課題】 アルコキシメチルフラノン誘導体を有効成分として含有することを特徴とする有害生物防除剤を提供する。

【解決手段】 下記式 (1) :



(式中、R¹は、C1～6アルキル基、C3～6アルケニル基、C3～6アルキニル基、C3～6シクロアルキル基などを表わし；R²は、水素原子、C1～6アルキル基又はC1～6アルコキシ基を表わし；R³は、C1～6アルキル基又はC2～6アルコキシアルキル基を表わし；R²とR³とは、互いに結合してC3～8シクロアルキルを形成してもよく；R⁴は、水素原子、R⁷CO基又はR⁸SO₂基を表わし (なお、R⁷は、C1～6アルキル基であり；R⁸は、置換又は無置換のフェニル基である。)；R⁵は、水素原子又はC1～6アルキルを表

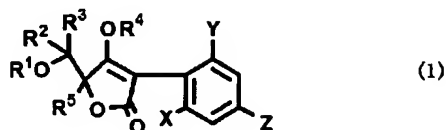
わし；X、Y及びZは、水素原子、C1～6アルキル基又はハロゲン原子を表わす。) で示されるアルコキシメチルフラノン誘導体。

THIS PAGE BLANK (USPTO)

【特許請求の範囲】

【請求項1】次式（1）：

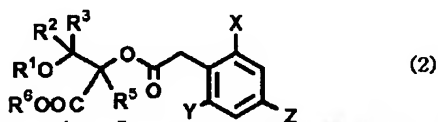
【化1】



（式中、R¹は、炭素原子数1～6個のアルキル基、炭素原子数3～6個のアルケニル基、炭素原子数3～6個のアルキニル基、炭素原子数3～6個のシクロアルキル基、炭素原子数4～12個のシクロアルキルアルキル基、フェニル基又はベンジル基を表わし；R²は、水素原子、炭素原子数1～6個のアルキル基を表わし；R³は、炭素原子数1～6個のアルキル基又は炭素原子数2～6個のアルコキシアルキル基を表わし；R²とR³とは、互いに結合して炭素原子数3～8個のシクロアルキルを形成してもよく；R⁴は、水素原子、R⁷CO基又はR⁸SO₂基を表わし（なお、R⁷は、炭素原子数1～6個のアルキル基であり；R⁸は、置換又は無置換のフェニル基である。）；R⁵は、水素原子又は炭素原子数1～6個のアルキル基を表わし；X、Y及びZは、各々独立して、水素原子、炭素原子数1～6個のアルキル基又はハロゲン原子を表わす。）で示されるアルコキシメチルフラノン誘導体。

【請求項2】次式（2）：

【化2】



（式中、R¹～R⁵、X、Y及びZは、請求項1の記載と同義であり；R⁶は、炭素原子数1～6個のアルキル基を表わす。）で示される化合物を溶媒中、塩基存在下で環化することを特徴とする請求項1記載の式（1）で示される化合物（1）の製造方法。

【請求項3】請求項1の式（1）で示される化合物（1）を有効成分とする有害生物防除剤。

【請求項4】請求項1の式（1）で示される化合物（1）を有効成分とする除草剤。

【請求項5】請求項1の式（1）で示される化合物（1）を有効成分とする殺虫剤。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明はアルコキシメチルフラノン誘導体及びそれを有効成分として含有することを特徴とする有害生物防除剤に関するものである。

【0002】

【従来の技術】本発明の類似の発明として特開平5-294853、特開平7-17945、特表平9-500

116などが挙げられるが、いずれの発明においても本発明のアルコキシメチルフラノン誘導体の具体的な化学構造及有害生物に対する効力の記載はない。

【0003】

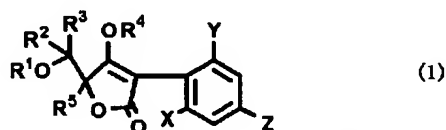
【発明が解決しようとする課題】本発明の課題は、アルコキシメチルフラノン誘導体を有効成分とする有害生物防除剤を提供することである。

【0004】

【課題を解決するための手段】本発明者らは、前記の課題を解決するために検討した結果、新規なアルコキシメチルフラノン誘導体を有効成分とする薬剤が、除草剤や殺虫剤などの有害生物防除剤として有効であることを見出し、本発明を完成した。即ち、本発明は、次の通りである。第1の発明は、次式（1）：

【0005】

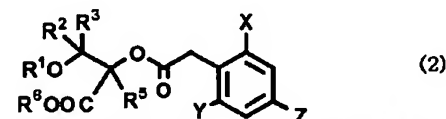
【化3】



【0006】（式中、R¹は、炭素原子数1～6個のアルキル基、炭素原子数3～6個のアルケニル基、炭素原子数3～6個のアルキニル基、炭素原子数3～6個のシクロアルキル基、炭素原子数4～12個のシクロアルキルアルキル基、フェニル基又はベンジル基を表わし；R²は、水素原子、炭素原子数1～6個のアルキル基を表わし；R³は、炭素原子数1～6個のアルキル基又は炭素原子数2～6個のアルコキシアルキル基を表わし；R²とR³とは、互いに結合して炭素原子数3～8個のシクロアルキルを形成してもよく；R⁴は、水素原子、R⁷CO基又はR⁸SO₂基を表わし（なお、R⁷は、炭素原子数1～6個のアルキル基であり；R⁸は、置換又は無置換のフェニル基である。）；R⁵は、水素原子又は炭素原子数1～6個のアルキル基を表わし；X、Y及びZは、各々独立して、水素原子、炭素原子数1～6個のアルキル基又はハロゲン原子を表わす。）で示されるアルコキシメチルフラノン誘導体に関するものである。第2の発明は、次式（2）：

【0007】

【化4】



【0008】（式中、R¹～R⁵、X、Y及びZは、前記と同義であり；R⁶は、炭素原子数1～6個のアルキル基を表わす。）で示される化合物を溶媒中、塩基存在下で環化することを特徴とする前記の式（1）で示される化合物（1）の製造方法に関するものである。第3の発

明は、前記の化合物(1)を有効成分とする有害生物防除剤に関するものである。

【0009】

【発明の実施の形態】以下、本発明について詳細に説明する。前記の式(1)で示される化合物〔以下、化合物(1)と称する。〕及び式(2)で示される化合物〔以下、化合物(2)と称する。〕の $R^1 \sim R^6$ 及び $X \sim Z$ は、次の通りである。

【0010】 $[R^1]$ R^1 としては、炭素原子数1～6個のアルキル基、炭素原子数3～6個のアルケニル基、炭素原子数3～6個のアルキニル基、炭素原子数3～6個のシクロアルキル基、炭素原子数4～12個のシクロアルキルアルキル基、フェニル基、ベンジル基を挙げることができる。アルキル基は、直鎖または分枝状のものであるが；好ましくは、炭素原子数が1～4個のものである（例えば、メチル基、エチル基、プロピル基を挙げることができる。）。アルケニル基は、直鎖状又は分枝状のものであるが；好ましくは、炭素原子数が3～4のものである；さらに好ましくは、プロペニル基である（例えば、アリル基を挙げることができる。）。アルキニル基は、直鎖状又は分枝状のものであるが；好ましくは、炭素原子数が3～4のものであるが；好ましくはプロピニル基である（例えば、プロパギル基を挙げることができる。）。シクロアルキル基は、好ましくは、炭素原子数が5～6個のものである；さらに好ましくは、シクロペンチル基である。シクロアルキルアルキル基は、炭素原子数1～6個の直鎖状又は分枝状のアルキル基を有する炭素原子数3～6個のシクロアルキル基であるが；好ましくは、炭素原子数1～4個の直鎖状又は分枝状のアルキル基を有する炭素原子数3～5個のシクロアルキル基であり；さらに好ましくは、シクロプロピルメチル基である。フェニル基は、無置換及置換フェニルであるが；無置換のものが好ましい。

【0011】 $[R^2]$ R^2 としては、水素原子、炭素原子数1～6個のアルキル基を挙げることができる。アルキル基は、直鎖状又は分枝状のものであるが；好ましくは、炭素原子数が1～4個のものである；さらに好ましくは、炭素原子数が1～3個のものである（例えば、メチル基、エチル基、プロピル基などを挙げることができる。）。

【0012】 $[R^3]$ R^3 としては、炭素原子数1～6個のアルキル基、炭素原子数2～6個のアルコキシアルキル基を挙げることができる。アルキル基は、直鎖状又は分枝状のものであるが；好ましくは、炭素原子数が1～4個のものである；さらに好ましくは、炭素原子数が1～3個のものである（例えば、メチル基、エチル基、プロピル基などを挙げることができる。）。アルコキシアルキル基は、直鎖状又は分枝状のものであるが；好ましくは、炭素原子数が2～4個のものである；さらに好ま

しくは、メトキシメチル基である。

【0013】 $[R^2 \text{と} R^3]$ R^2 と R^3 とは、互いに結合して炭素原子数3～8個のシクロアルキルを形成することもできる。シクロアルキルは、好ましくは、炭素原子数が3～6個のものである；さらに好ましくは、炭素原子数が5～6個のものである（例えば、シクロペンチル基、シクロヘキシル基などを挙げることができる。）。

【0014】 $[R^4]$ R^4 としては、水素原子、 R^7CO 基、 R^8SO_2 基を挙げることができる。 R^7 は、直鎖状又は分枝状のアルキル基であり；好ましくは、炭素原子数が1～4個であり；さらに好ましくは、炭素原子数が1～3個である（例えば、メチル基などを挙げることができる。）。 R^8 は、置換又は無置換のフェニル基であるが；好ましくは、無置換のものである。

【0015】 $[R^5]$ R^5 としては、水素原子、炭素原子数1～6個のアルキル基を挙げることができる。アルキル基は、直鎖状又は分枝状のものを挙げることができるが；好ましくは、炭素原子数が1～4個のものである；さらに好ましくは、炭素原子数が1～3個のものである（例えば、メチル基などを挙げることができる。）。

【0016】 $[R^6]$ R^6 としては、炭素原子数1～6個のアルキル基を挙げることができる。アルキル基は、直鎖状又は分枝状のものを挙げることができるが；好ましくは、炭素原子数が1～4個のものである；さらに好ましくは、炭素原子数が1～3個のものである（例えば、メチル基、エチル基などを挙げることができる。）。

【0017】 $[X, Y \text{ 及び } Z]$ X, Y 及び Z は、各々独立して、水素原子、炭素原子数1～6個のアルキル基、ハロゲン原子を挙げることができる。アルキル基は、直鎖状又は分枝状のものであるが；好ましくは、炭素原子数が1～4個であり；さらに好ましくは、炭素原子数が1～3個である（例えば、メチル基などを挙げることができる。）。ハロゲン原子は、フッ素原子、塩素原子、臭素原子、ヨウ素原子であるが；好ましくは、塩素原子である。

【0018】目的化合物である新規なアルコキシメチルフラノン誘導体〔化合物(1)〕としては、不斉炭素に基づく光学異性体も挙げることができる。化合物(1)としては、前記の各種の置換基を組み合わせたものを挙げることができるが、薬効の面から好ましいものは、次の通りである。

(1) R^1 及び $X \sim Z$ が炭素原子数1～6個のアルキル基であり、 $R^2 \sim R^6$ が水素原子である化合物(1)。例えば、表1中に記載した化合物番号1, 2などを挙げることができる。

(2) $R^1 \sim R^3$ 及び $X \sim Z$ が炭素原子数1～6個のアルキル基であり、 R^4 及び R^5 が水素原子である化合物

(1)。例えば、表1及び2中に記載した化合物番号4, 11～13, 18, 20, 23などを挙げることができる。

【0019】(3) $R^1 \sim R^3$ 及び $X \sim Z$ が炭素原子数 1 ～ 6 個のアルキル基であり、 R^4 が R^7CO 基であり、 R^5 が水素原子である化合物 (1)。例えば、表 1 中に記載した化合物番号 5 などを挙げるができる。

(4) $R^1 \sim R^3$ 及び $X \sim Z$ が炭素原子数 1 ～ 6 個のアルキル基であり、 R^4 が R^8SO_2 基であり、 R^5 が水素原子である化合物 (1)。例えば、表 1 中に記載した化合物番号 6 などを挙げることができる。

(5) $R^1 \sim R^3$ 及び X が炭素原子数 1 ～ 6 個のアルキル基であり、 R^4 , R^5 , Y 及び Z が水素原子である化合物 (1)。例えば、表 1 中に記載した化合物番号 7 などを挙げることができる。

(6) $R^1 \sim R^3$ 及び R^5 が炭素原子数 1 ～ 6 個のアルキル基であり、 R^4 が水素原子であり、 $X \sim Z$ が炭素原子数 1 ～ 6 個のアルキル基である化合物 (1)。例えば、表 1 中に記載した化合物番号 9 などを挙げるができる。

(7) R^1 が炭素原子数 3 ～ 6 個のアルケニル基であり、 R^2 , R^3 及び $X \sim Z$ が炭素原子数 1 ～ 6 個のアルキル基であり、 R^4 及び R^5 が水素原子である化合物

(1)。例えば、表 1 中に記載した化合物番号 14, 16, 17 などを挙げることができる。

【0020】(8) R^1 が炭素原子数 3 ～ 6 個のアルキニル基であり、 R^2 , R^3 及び $X \sim Z$ が炭素原子数 1 ～ 6 個のアルキル基であり、 R^4 及び R^5 が水素原子である化合物 (1)。例えば、表 2 中に記載した化合物番号 21 などを挙げることができる。

(9) R^1 が炭素原子数 4 ～ 12 個のシクロアルキルアルキル基であり、 R^2 , R^3 及び $X \sim Z$ が炭素原子数 1 ～

6 個のアルキル基であり、 R^4 及び R^5 が水素原子である化合物 (1)。例えば、表 2 中に記載した化合物番号 22 などを挙げることができる。

(10) R^1 がベンジル基であり、 R^2 , R^3 及び $X \sim Z$ が炭素原子数 1 ～ 6 個のアルキル基であり、 R^4 が R^7CO 基であり、 R^5 が水素原子である化合物 (1)。例えば、表 2 中に記載した化合物番号 25 などを挙げることができる。

【0021】(11) R^1 が炭素原子数 3 ～ 6 個のシクロアルキル基であり、 R^2 , R^3 及び $X \sim Z$ が炭素原子数 1 ～ 6 個のアルキル基であり、 R^4 及び R^5 が水素原子である化合物 (1)。例えば、表 2 中に記載した化合物番号 26 などを挙げることができる。

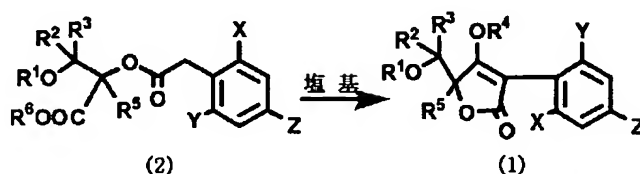
(12) R^1 , R^2 及び $X \sim Z$ が炭素原子数 1 ～ 6 個のアルキル基であり、 R^3 が炭素原子数 2 ～ 6 個のアルコキシアルキル基であり、 R^4 及び R^5 が水素原子である化合物 (1)。例えば、表 2 中に記載した化合物番号 29 などを挙げることができる。

(13) R^1 及び $X \sim Z$ が炭素原子数 1 ～ 6 個のアルキル基であり、 R^2 と R^3 が互いに結合して炭素原子数 3 ～ 8 個のシクロアルキルを形成し、 R^4 及び R^5 が水素原子である化合物 (1)。例えば、表 2 中に記載した化合物番号 30, 31 などを挙げることができる。

【0022】化合物 (1) は、次に示すように、溶媒中、塩基存在下で化合物 (2) を環化することによって製造することができる。

【0023】

【化 5】



【0024】(式中、 $R^1 \sim R^6$, X , Y 及び Z は、前記と同義である。)

化合物 (2) は、ヨーロッパ特許 EP 481512

A1 などに記載の方法で製造した 3-アルコキシ-2-ヒドロキシアルカン酸類とカルボン酸から、常法によって製造した酸クロライドを反応させることで容易に製造することができる。化合物 (1) としては、例えば、表 1 及び 2 中に示した化合物 1 ～ 32 などに対応した各置換基の種類からなる化合物 (1) [各々、化合物

(1)₁ ～ (1)₃₁ などと称する。例えば、化合物 (1)₁ とは化合物 (1) における R^1 が CH_3 、 R^2 が水素原子、 R^3 が CH_3 、 R^4 及び R^5 が水素原子、 X , Y , Z が CH_3 であることを意味する。) を挙げることができる。

【0025】化合物 (1) の合成で用いる溶媒として

は、本反応に直接関与しないものであれば特に限定されず、例えば、ジエチルエーテル、テトラヒドロフラン、ジオキサンなどのエーテル類；N, N-ジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシドなどの双極性非プロトン溶媒類；ベンゼン、トルエン、キシレンなどの芳香族炭化水素類；アセトニトリルなどのニトリル類；それらの混合溶媒などを挙げることができる。化合物 (1) の製造に用いる塩基としては、炭酸カリウム、炭酸ナトリウムなどのアルカリ炭酸塩類；ナトリウムメトキサイド、カリウム-*t*-ブトキシサイドなどのアルカリアルコキシサイド類；水素化ナトリウムなどの無機塩基類を挙げるができる。

【0026】化合物 (1) の製造法は、反応濃度が 5 ～ 80% で行うことができる。その製造法において、塩基を用いる割合は化合物 (2) 1 モルに対して 0.5 ～ 2

モルの割合で加えることができるが好ましくは1~1.2モルが良い。その反応温度は使用する溶媒の沸点以下で行う限り特に限定されないが、通常0~110℃で行うことができる。その反応時間は、前記濃度、温度によって変化するが、通常0.5~24時間で行うことができる。前記製造法とで製造した化合物(1)としては、例えば表1及び2中に示した化合物1~32などを挙げることができる〔例えば、化合物1とは、化合物(1)におけるR¹がCH₃、R²が水素原子、R³がCH₃、R⁴及びR⁵が水素原子、X、Y及びZがCH₃であることを意味する。〕。本発明の有害生物防除剤は顕著な除草・殺虫効果を有しており、化合物(1)の1種以上を有効成分として含有するものである。

【0027】本発明の活性化合物は、例えば下記の雑草に有効であり水田および畑作物用除草剤として使用することができる。単子葉雑草としてはノビエ、ホタルイ、ミズガヤツリ、タマガヤツリ、ヘラオモダカ、コナギ、ウリカワなどの水田雑草およびメヒシバ、オヒシバ、エノコログサ、スズメノテッポウ、スズメノカタビラなどの畑地雑草。双子葉雑草としてはアゼナ、キカシグサ、セリなどの水田雑草およびシロザ、イヌビユ、イチビ、アサガオ、オナモミ、エビスグサ、ハコベなどの畑地雑草。

【0028】本発明の活性化合物は、植物の発芽前および発芽後のいずれにおいても施用することができ、播種前に土壌混和することもできる。本発明の活性化合物の投薬量は、化合物の種類、対象植物の種類、適用時期、適用場所、望むべき効果の性質などに応じて広い範囲にわたって変えることができるが、一応の目安としては、1ヘクタール当たり活性化合物として、約0.001~10kg、好ましくは約0.01~5kgの範囲を例示することができる。

【0029】また本発明の活性化合物は、例えば下記の農園芸害虫に有効であり水田および畑作物用殺虫剤あるいは衛生害虫用殺虫剤として使用することができる。農園芸害虫〔例えば、半翅目(ウンカ類、ヨコバイ類、アブラムシ類、コナジラミ類など)、鱗翅目(ヨトウムシ類、コナガ、ハマキムシ類、メイガ類、シンクイムシ類、モンシロチョウなど)、鞘翅目(ゴミムシダマシ類、ゾウムシ類、ハムシ類、コガネムシ類など)、ダニ目(ハダニ科のミカンハダニ、ナミハダニなど、フシダニ科のミカンサビダニなど)〕；線虫(ネコブセンチュウ、シストセンチュウ、ネグサレセンチュウ、シンガレセンチュウ、マツノザイセンチュウなど)；衛生害虫(例えば、ハエ、カ、ゴキブリなど)；屋内ダニ類(例えば、ヒョウヒダニ科のコナヒョウヒダニ、ヤケヒョウヒダニなど、コナダニ科のケナガコナダニ、ムギコナダニなど)；動物寄生性ダニ類(例えば、ニクダニ類、ツメダニ類、ホコリダニ類など)；貯穀害虫(コクストモドキ類、マメゾウムシ類など)。

【0030】また、本発明化合物(1)は浸透移行性を有し、葉茎散布はもとより、種子処理、苗箱処理、株元処理、土壌灌注処理、土壌混和処理で使用可能である。本発明の活性化合物の投薬量は、化合物の種類、対象害虫の種類、適用時期、適用場所、望むべき効果の性質などに応じて広い範囲にわたって変えることができるが、一応の目安としては、1ヘクタール当たり活性化合物として、約0.001~10kg、好ましくは約0.01~5kgの範囲を例示することができる。化合物(1)は、単独で使用することもできるが、通常は常法によって、希釈剤、界面活性剤、分散剤、補助剤などを配合し、例えば、粉剤、乳剤、微粒剤、粒剤、水和剤、顆粒水和剤、水性懸濁液、油性懸濁液、乳濁剤、可溶性製剤、油剤、マイクロカプセル剤、エアゾールなどの組成物として調製して使用することが好ましい。

【0031】固体希釈剤としては、例えば、タルク、ベントナイト、モンモリロナイト、クレー、カオリン、炭酸カルシウム、ケイソウ土、ホウトカーボン、パーミキュライト、消石灰、ケイ砂、硫安、尿素などが挙げられる。液体希釈剤としては、例えば、炭化水素類、例えばクロシン、鉱油など；芳香族炭化水素類、例えばベンゼン、トルエン、キシレン、ジメチルナフタレン、フェニルキシリルエタンなど；塩素化炭化水素類、例えばクロロホルム、四塩化炭素など；エーテル類、例えばジオキサン、テトラヒドロフランなど；ケトン類、例えばアセトン、シクロヘキサノン、イソホロンなど；エステル類、例えば酢酸エチル、エチレングリコールアセテート、マレイン酸ジブチルなど；アルコール類、例えばメタノール、n-ヘキサノール、エチレングリコールなど；極性溶媒類、例えばジメチルホルムアミド、ジメチルスルホキシド、Nメチルピロリドンなど；水などが挙げられる。

【0032】固着剤及び分散剤としては、例えば、カゼイン、ポリビニルアルコール、カルボキシメチルセルローズ、ベントナイト、ザンサンガム、アラビアガムなどが挙げられる。エアゾール噴射剤としては、例えば、空気、窒素、炭酸ガス、プロパン、ハロゲン化炭化水素などが挙げられる。安定剤としては、例えば、PAP、BHTなどが挙げられる。界面活性剤としては、例えば、アルキルサルフェート塩、アルキルスルホン酸塩、アルキルベンゼンスルホン酸塩、リグニンスルホン酸塩、ジアルキルスルホコハク酸塩、ナフタレンスルホン酸塩縮合物、ポリオキシエチレンアルキルエーテル、ポリオキシエチレンアルキルアリルエーテル、ポリオキシエチレンアルキルエステル、アルキルソルビタンエステル、ポリオキシエチレンソルビタンエステル、ポリオキシエチレンアルキルアミンなどを挙げることができる。

【0033】本剤の製造では、前記の希釈剤、界面活性剤、分散剤及び補助剤をそれぞれの目的に応じて、各々単独で又は適当に組み合わせて使用することができる。

本発明の化合物(1)を製剤化した場合の有効成分濃度は、乳剤では通常1～50重量％、粉剤では通常0.3～25重量％、水和剤及び顆粒水和剤では通常1～90重量％、粒剤では通常0.5～10重量％、懸濁剤では通常0.5～40重量％、乳濁剤では通常1～30重量％、可溶化製剤では通常0.5～20重量％、エアゾールでは通常0.1～5重量％である。これらの製剤を適当な濃度に希釈して、それぞれの目的に応じて、植物茎葉、土壌、水田の水面に散布するか、又は直接施用することによって各種の用途に供することができる。

【0034】

【実施例】以下、本発明を実施例によって具体的に説明する。なお、これらの実施例は、本発明の範囲を限定するものではない。

実施例1〔化合物(1)の合成〕

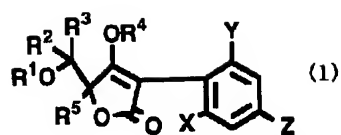
(1) 4-ヒドロキシ-5-(1-メトキシ-1-メチル)エチル-3-(2, 4, 6-トリメチル)フェニルジヒドロフラノンの合成(化合物番号4)

3-メトキシ-3-メチル-2-(2, 4, 6-トリメチルベンジルカルボニルオキシ)ブタン酸エチル3.22g(0.01mol)をテトラヒドロフラン(THF)20mlに溶解し、カリウム-*t*-ブトキサイド1.12g(0.01mol)を加え室温で1時間攪拌した得られた反応液に飽和クエン酸水溶液30mlを加え酢酸エチルで抽出、酢酸エチル層を水洗し、硫酸ナトリウムで乾燥し、酢酸エチルを減圧留去して得られた残渣をカラムクロマトグラフィー(洞海化学工業社製のMs gel D-150-60A、*n*-ヘキサン：酢酸エチル=7：3溶出)によって単離し油状物である目的化合物1.3g(収率は47%)を得た。

(2) 表1及び2中のその他の化合物(1)の合成
前記(1)の方法に準じて、表1及び2中のその他の化合物(1)を合成した。以上の様にして合成した化合物(1)及びそれらの物性を表1～4に示す。

【0035】

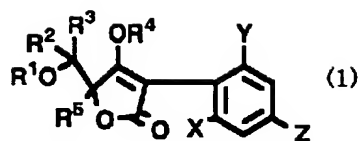
【表1】









化合物 番号	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	X	Y	Z
1	CH ₃	H	CH ₃	H	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃
2	i-C ₃ H ₇	H	CH ₃	H	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃
3	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H	H	H	H	CH ₃
4	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃
5	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃ CO	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃
6	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H ₃ C-C ₆ H ₄ -SO ₂	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃
7	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H	H	CH ₃	H	H
8	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H	H	OCH ₃	H	H
9	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃
10	CH ₃	CH ₃	C ₂ H ₅	H	H	CH ₃	H	H
11	CH ₃	CH ₃	C ₂ H ₅	H	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃
12	CH ₃	CH ₃	C ₂ H ₅	H	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃
13	C ₂ H ₅	CH ₃	CH ₃	H	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃
14	CH ₂ =CHCH ₂ -	CH ₃	CH ₃	H	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃
15	CH ₂ =CHCH ₂ -	CH ₃	CH ₃	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃	CH ₃
16	CH ₂ =CHCH ₂ -	CH ₃	C ₂ H ₅	H	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃
17	CH ₂ =CHCH ₂ -	CH ₃	C ₂ H ₅	H	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃
18	CH ₃	CH ₃	n-C ₃ H ₇	H	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃
19	CH ₃	CH ₃	n-C ₃ H ₇	H	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃
20	CH ₃	C ₂ H ₅	C ₂ H ₅	H	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃

【0036】

【表2】



化合物 番号	R ¹	R ²	R ³	R ⁴	R ⁵	X	Y	Z
21	CH≡CCH ₂ -	CH ₃	CH ₃	H	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃
22	▷CH ₂ -	CH ₃	CH ₃	H	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃
23	n-C ₃ H ₇	CH ₃	CH ₃	H	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃
24	 -CH ₂ -	CH ₃	CH ₃	H	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃
25	 -CH ₂ -	CH ₃	CH ₃	CH ₃ CO	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃
26		CH ₃	CH ₃	H	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃
27		CH ₃	CH ₃	H	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃
28	CH ₃	CH ₃	C ₂ H ₅	H	H	Cl	H	Cl
29	CH ₃	CH ₃	CH ₃ OCH ₂ -	H	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃
30	CH ₃			H	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃
31	CH ₃			H	H	CH ₃	CH ₃	CH ₃
32	CH ₃	CH ₃	CH ₃	H	H	Cl	Cl	H

【0037】

【表3】

化合物番号	物 性
	NMRデータ、融点、性状など
1	2.17(3H,s),2.18(3H,s),2.27(3H S),4.99(1H,d),6.60(2H,s)
2	赤褐色粘稠液体
3	m.p.79.9~81.3℃
4	1.23(3H,s),1.49(3H,s),2.18(3H,s),2.17~2.27(1H,m),3.39(3H,s),6.89(2H,s)
5	1.21(3H,s),1.41(3H,s),2.29(3H,s),5.31(1H,s),6.91(2H,s)
6	1.39(3H,s),1.46(3H,s),1.82(3H,s),2.10(3H,s),2.37(3H,s),2.45(3H,s),3.29(3H,s),5.19(1H,s)
7	1.22(3H,s),1.48(3H,s),3.39(3H,s),4.63(1H,s)
8	1.28(3H,s),1.39(3H,s),3.49(3H,s),3.93(3H,s),4.68(1H,s)
9	1.32(3H,s),1.41(3H,s),1.67(3H,s),3.36(3H,s),4.68(1H,s),6.98(2H,s)
10	0.95~0.99(3H,t),1.55~1.75(2H,m),1.67(3H,s),2.29(3H,s),3.44(3H,s),4.71(1H,s)
11	1.02(3H,tj=7.3),1.23(3H,s),1.81(1H,qj=7.3),1.87(1H,q j=7.3),4.84(1H,d),6.89(2H,s)
12	0.99(3H,t j=7.3),1.49(3H,s),1.65(1H,q j=7.3),1.70(1H,q j=7.3)
13	2.17(3H,s),2.18(3H,s),2.26(3H,s),4.67(1H,s),6.89(2H,s)
14	1.29(6H,s),2.18(3H,s),2.19(3H,s),2.27(3H,s),4.06(1H,dd j=5.8 11.7),4.06(1H,dd j=5.1 11.7)
15	m.p.149~154℃
16	1.04(3H,tj=7.3),1.27(3H,s),1.84(1H,qj=7.3),1.89(1H,q j=7.3),4.01(2H,m),4.88(1H,s)
17	0.99(3H,s),1.51(3H,s),1.68(1H,q j=7.3),1.73(1H,q j=7.3),4.12(2H,m),4.78(1H,s)
18	3.34(3H,s),4.48(1H,s),6.89(2H,s)
19	3.42(3H,s),4.73(1H,s),6.90(2H,s),8.07(1H,s)
20	0.99(3H,t j=7.3),1.04(3H,t j=7.3),1.78(2H,q j=7.3),1.88(2H,q j=7.3),2.27(3H,s),4.89(1H,s),6.90(2H,s)

【0038】

【表4】

化合物番号	物 性
	NMRデータ、融点、性状など
21	2.18(3H,s),2.19(3H,s),2.19(3H,s),2.27(3H,s),4.74(1H,s),6.90(2H,s)
22	0.17~0.65(4H,m),2.19(6H,s),2.27(3H,s),4.70(1H,s),6.90(2H,s)
23	0.95(3H,t j=7.3),1.27(3H,s),1.50(3H,s),1.61(2H,m),3.52(2H,t)
24	2.04(3H,s),2.17(3H,s),2.28(3H,s),4.74(1H,s),7.29~7.39(5H,m),7.98(1H,s)
25	1.33(3H,s),1.55(3H,s),2.09(3H,s),2.10(3H,s),2.16(3H,s),2.27(3H,s),4.47(1H,d j=10.5),4.53(1H,d j=10.5)
26	1.27(3H,s),1.45(3H,s),2.18(3H,s),2.19(3H,s),2.36(3H,s),4.31(1H,m),4.46(1H,s),6.89(2H,s)
27	1.30(3H,s),1.38(3H,s),2.10(3H,s),2.22(3H,s),2.55(3H,s),4.98(1H,s),6.92(2H,s)
28	0.89~1.01(3H,m),3.23(3H,s)
29	6.89(2H,s)
30	1.72~1.77(6H,m),2.06~2.09(2H,m),2.18(3H,s),2.19(3H,s),2.27(3H,s),3.42(3H,s),4.90(1H,s),6.90(2H,s)
31	1.58~1.86(10H,m),2.17(3H,s),2.18(3H,s),2.27(3H,s),3.50(3H,s),4.80(1H,s),6.90(2H,s)
32	1.28(3H,s),1.50(3H,s),3.41(3H,s),4.71(1H,s),3.87(1H,s)

【0039】実施例2【製剤の調製】

(1) 粒剤の調製

化合物1を5重量部、ペントナイト35重量部、タルク57重量部、デシルベンゼンスルホン酸ソーダ1重量部及びリグニンスルホン酸ソーダ2重量部を均一に混合し、次いで少量の水を添加して混練した後、押し出し造粒、乾燥して粒剤を得た。

【0040】(2) 水和剤の調製

化合物1を10重量部、カオリンクレー70重量部、ホワイトカーボン18重量部、ドデシルベンゼンスルホン酸ソーダ1.5重量部及びβ-ナフタレンスルホン酸ソーダホルマリン縮合物0.5重量部とを均一に混合し、次いでエアミル粉碎して水和剤を得た。

【0041】(3) 乳剤の調製

化合物1を20重量部及びキシレン70重量部に、ソルポール3005X(商品名;東邦化学製)10重量部を加えて均一に混合し、溶解して乳剤を得た。

【0042】(4) 粉剤の調製

化合物1を5重量部、タルク50重量部及びカオリンクレー45重量部を均一に混合して粉剤を得た。

【0043】実施例3(有害生物防除試験)

(1) 除草活性試験

(1) 水田除草試験

1/5000アールのワグネルポットに宇部土壌(沖積堆填土)を充填し、ノビエ、ホタルイ、ミズガヤツリ、ウリカワの種子または塊茎を植え、水を加えて水深3cmの状態にした。実施例2に準じて調整した表1及び2に示す目的化合物(1)の水和剤を、界面活性剤(0.5%)を含む水で希釈し、ノビエ1.5葉期にこれらの各薬液中における化合物(1)の有効濃度が2000g/haとなるようにピペットを用いて滴下処理した。そして平均気温25℃のガラス室で3週間管理した後、それらの除草効果を調査した。除草効果の評価は、無処理区の状態と比較して、以下の6段階で示した。

【0:正常発育、1:僅少害、2:小害、3:中害、4:大害、5:完全枯死】

その結果を、表5に示す。

【0044】

【表5】

化合物番号	効 果			
	ノビエ	ホタルイ	ミズガヤツリ	ウリカワ
2	1	2	5	0
4	5	5	5	3
5	5	5	5	0
11	5	5	5	1
12	5	4	4	0
13	5	4	5	2
14	5	4	1	—
16	4	5	4	3
17	5	3	5	2
18	4	0	4	0
20	5	4	4	2

【0045】(2)畑作土壌処理試験

1/5000アールのワグネルポットに宇部土壌（沖積
堆積土）を充填し、トウモロコシ、ダイズ、ワタ、コム
ギ、ソルガム、シュガービート、メヒシバ、ノビエ、エ
ノコログサ、ノスズメノテッポウ、スズメノカタビラの
種子を植えて覆土した。実施例2に準じて調整した表1
及び2に示す目的化合物（1）の水和剤を、界面活性剤
（0.05%）を含む水で希釈し、これらの各薬液中に
おける化合物（1）の有効濃度が2000g/haとな
るように各土壌表層に均一に噴霧した。そして平均気温
25℃のガラス室で3週間管理した後に、それらの除草
効果を調査した。除草効果の評価は、前記の(1)と同様
に行った。その結果を、表6に示す。

【0046】

【表6】

化 合 物 番 号	効 果										
	ト ウ モ ロ コ シ	ダ イ ズ	ワ タ	コ ム ギ	ソ ル ガ ム	シ ュ ガ ー ビ ー ト	メ ヒ シ バ	ノ ビ エ	エ ノ コ ロ グ サ	ノ ス ズ メ ノ テ ッ ポ ウ	ス ズ メ ノ カ タ ビ ラ
1	—	0	0	0	0	0	3	4	5	3	4
4	—	0	0	2	3	2	4	5	4	5	5
5	—	0	0	2	3	3	3	5	5	5	5
6	2	0	0	2	3	0	5	5	5	5	5
11	—	2	0	4	3	3	5	5	5	5	5
12	1	0	0	5	1	1	4	5	5	5	5
13	1	0	0	0	3	0	4	5	4	3	4
18	2	0	0	0	3	0	4	5	4	3	3
20	0	0	0	0	0	1	3	4	3	4	4
21	—	1	0	0	3	0	5	5	3	3	5
26	0	0	0	0	2	0	3	4	3	4	5
29	—	0	0	0	4	0	4	5	4	5	5

【0047】(3)畑作茎葉処理試験

1/5000アールのワグネルポットに火山灰土壌を充
填し、トウモロコシ、ダイズ、ワタ、コムギ、ソルガ
ム、シュガービート、コウライシバ、メヒシバ、ノビ
エ、エノコログサ、ノスズメノテッポウ、スズメノカタ
ビラの種子を植えて覆土し、平均気温25℃のガラス室
で約2週間栽培した。各植物が適度に生育した時期に、
実施例2に準じて調整した表1及び2に示す目的化合物
（1）の水和剤を、界面活性剤（0.05%）を含む水
で2000ppmに希釈し、前記の各植物体に均一に噴
霧した。そして平均気温25℃のガラス室で3週間管理
した後に、それらの除草効果を調査した。除草効果の評
価は、前記の(1)と同様に行った。その結果を、表7に
示す。

【0048】

【表7】

化合物番号	効 果											
	トウモロコシ	ダイズ	ワタ	コムギ	ソルガム	シュガービート	コウライシバ	メヒシバ	ノビエ	エノコログサ	ノスズメノテツボウ	スズメノカタビラ
2	—	1	0	1	2	0	0	1	4	1	5	4
4	—	0	0	2	3	2	2	4	5	3	5	4
5	2	0	0	1	3	0	0	3	5	4	3	5
9	2	0	0	0	1	0	0	3	5	5	3	4
11	1	0	0	0	3	0	0	3	5	4	5	5
12	1	0	0	0	0	0	0	2	4	3	5	5
13	—	2	0	2	2	0	0	2	5	4	5	5
14	—	0	0	1	2	0	0	1	3	2	4	5
17	2	0	0	0	2	0	0	0	3	1	4	5
18	2	0	0	1	2	0	0	0	5	3	4	4
20	0	0	0	0	1	0	0	2	4	3	4	5
21	—	0	0	1	1	1	0	3	3	4	4	5
22	2	3	0	1	2	0	0	1	3	2	5	5
29	2	0	0	0	3	4	1	3	5	5	5	5
30	0	0	0	1	2	0	0	1	3	2	5	5

【0049】(2) 殺虫活性試験

(1) トビイロウンカに対する殺虫効力試験

実施例2に準じて調製した表1及び2に示す化合物

(1) の各水和剤を界面活性剤 (0.01%) を含む水で300ppmに希釈し、これらの各薬液中にイネ稚苗を30秒間浸漬し、風乾後、それぞれのガラス円筒に挿入した。次に、これらのガラス円筒に各々10頭のトビイロウンカ (4齢幼虫) を放ち、多孔質の蓋をし、25℃の定温室に放置し、4日後に各ガラス円筒の生死虫数を数えて死虫率を求めた。殺虫効果の評価は、死虫率の範囲によって、4段階 (A: 100%, B: 100未満~80%, C: 80未満~60%, D: 60未満) で示した。その結果を、表8に示す。

【0050】

【表8】

化合物番号	効 果
1	A
2	B
4	B
13	A
14	A
18	B
20	B
21	A
22	B
23	B
25	B
26	B

【0051】(2) モモアカアブラムシに対するナスポット
土壌処理効力試験 (浸透移行性)

5~6葉期のポット植えのナスにモモアカアブラムシ無翅雌成虫を2頭接種し、温室内に放置し、3日後に寄生アブラムシ数を数えた。その後、実施例2に準じて調整した表1及び2に示す化合物 (1) の水和剤を界面活性剤 (0.01%) を含む水で30ppmに希釈した薬液50mlを、アブラムシの寄生したナスの株元に灌注した。7日後に寄生アブラムシ数を数え、無処理区に対する防除率を算出した。殺虫効果の評価は、前記の(1)と同様に行った。その結果を、表9に示した。

【0052】

【表9】

化合物番号	効 果
1	A
2	B
4	A
5	A
7	A
1 1	A
1 2	A
1 3	A
1 4	A
2 0	A
2 2	B
2 3	B
3 0	A
3 1	B

【0053】

【発明の効果】本発明のアルコキシメチルフラノン誘導体を有効成分として含有することを特徴とする有害生物防除剤は、除草剤や殺虫剤などの有害生物防除剤として有効である。

フロントページの続き

(72)発明者 岡田 辰夫
 山口県宇部市大字小串1978番地の5 宇部
 興産株式会社宇部研究所内
 (72)発明者 中村 和幸
 山口県宇部市大字小串1978番地の5 宇部
 興産株式会社宇部研究所内

(72)発明者 中村 明
 山口県宇部市大字小串1978番地の5 宇部
 興産株式会社宇部研究所内
 Fターム(参考) 4C037 KA04
 4H011 AB01 AB02 AC01 AC02 AC04